

文章编号: 1000-324X(2007)01-0170-03

Nd³⁺:Gd₃Ga₅O₁₂ 晶体的热物理性能研究

王召兵^{1,2,4}, 蔡岸³, 奚同庚³, 张庆礼¹, 孙敦陆¹, 殷绍唐¹

(1. 中国科学院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031; 2. 曲阜师范大学激光所, 曲阜 273165; 3. 中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050; 4. 中国科学院研究生院, 北京 100049)

摘要: 提拉法生长了 Nd³⁺:Gd₃Ga₅O₁₂(Nd:GGG) 单晶, 用差示扫描量热法 (DSC) 和激光脉冲法分别测量了 Nd:GGG 激光晶体的比热和热扩散系数, 计算得到晶体的导热系数, 与用 PPMS 测量得到的导热系数相吻合. 实验结果表明: Nd:GGG 激光晶体具有较大的比热和导热系数, 具有良好的热物理性能; Nd:GGG 晶体的热扩散系数和导热系数随着温度的升高而减小; 计算得到晶体的德拜温度为 711K.

关键词: Nd:GGG 晶体; 比热; 热扩散系数; 导热系数

中图分类号: O782 **文献标识码:** A

Thermophysical Properties of Nd³⁺:Gd₃Ga₅O₁₂ Crystal

WANG Zhao-Bing^{1,2,4}, CAI An³, XI Tong-Geng³, ZHANG Qing-Li¹, SUN Dun-Lu¹, YIN Shao-Tang¹

(1. Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 2. Laser Research Institute of Qufu Normal University, Qufu 273165, China; 3. Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China; 4. Graduate University of the Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Nd³⁺:Gd₃Ga₅O₁₂ (Nd:GGG) single crystals were grown by the Czochraski method. Specific heat and thermal diffusivity of Nd:GGG single crystals were measured with differential scanning calorimetry and laser flash methods, respectively. The thermal conductivity of Nd:GGG was calculated, and consistent with the thermal conductivity measured with PPMS. The experimental results indicate that Nd:GGG single crystal has good thermal properties such as high specific heat and thermal conductivity. Thermal diffusivity and thermal conductivity of Nd:GGG single crystal vary with temperature. The higher temperature is, the lower thermal diffusivity and the thermal conductivity are. The Debye temperature of Nd:GGG is 711K.

Key words Nd:GGG crystal; specific heat; thermal diffusivity; thermal conductivity

1 引言

Nd³⁺:Gd₃Ga₅O₁₂(简称 Nd:GGG) 晶体具有良好的力学和化学稳定性、较宽的泵浦吸收带以及较长的荧光寿命等优点^[1], 可作为高平均功率固体热容激光器的工作介质, 各国正在积极开展这方面的研究工作, 以期用于激光武器系统. 在国内尚无大直径 Nd:GGG 晶体生长的报道, 本工作用提拉法生长了 $\phi 64\text{mm}$ 的 Nd:GGG 晶体, 并在国内实现了重复频率 500Hz、平均功率 1400W 的激光输出. 在高

功率运转的情况下, Nd:GGG 晶体的热物理性质会影响到激光光束质量和激光效率. 而且 Nd:GGG 晶体的热物理性质还与优质晶体生长密切相关. 本文报道了对 Nd:GGG 晶体的比热、热扩散系数和导热系数的测试和研究结果, 有助于晶体生长工艺和激光器件的优化设计.

2 实验方法

沿 Nd:GGG 单晶 (111) 面切取晶片, 制成

收稿日期: 2006-03-09, 收到修改稿日期: 2006-03-30

基金项目: 国家自然科学基金 (60478025)

作者简介: 王召兵 (1972-), 男, 博士, 副教授. E-mail: zhaobingwang@yahoo.com.cn

φ4mm×1mm 的样品. 采用差示扫描量热法 (DSC) 测定晶体的比热 [2], 升温速率为 10K/min. 通入氩气作为保护气氛, 用蓝宝石作为参比样品.

用激光脉冲法测量了晶体的热扩散系数, 仪器误差 ≤5% [2,3]. 样品为 φ10.2mm×2.21mm 晶片, 两面沿 <111> 方向定向、不抛光. 为防止激光热导仪射出的激光透过试样, 两面溅射 2μm 的 SiC 膜, 激光照射面喷涂 5μm 的乳胶石墨高导热防透膜. 使用铷玻璃激光器, 脉冲为 1ms, 脉冲能量为 3J.

作为对比测试, 用美国 Quantum Design 公司生产的测量仪器 physical property measurement system (PPMS) 测量了 Nd:GGG 晶体的导热系数. 样品尺寸为 10mm×4mm×2.5mm, 升温速率为 0.75K/min.

3 实验结果和讨论

DSC 测试结果显示 Nd:GGG 晶体具有较大的比热, 在 373K 为 0.42J/g⁻¹K⁻¹, 由测试值给出 C_p 的拟合方程为:

$$C_p = a + bT + cT^{-2} \quad (1)$$

式 (1) 中 T 的单位是绝对温度, a=0.36066, b=0.00015, c=1085.846. 测试值与拟合值的相对误差为 0.2%~1%.

比热是晶体内原子的热运动引起的, 德拜模型给出了比热随温度变化的理论描述 [4]:

$$C_v = 9nR \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{\theta_D/T} \frac{e^x x^4}{(e^x - 1)^2} dx \quad (2)$$

其中 C_v 是摩尔定容比热, n 是化学式中的原子数, R 是气体常数, M 是分子量, θ_D 为德拜温度. 在低温时 (T << θ_D), 比热与 T³ 成正比, 高温时 (T >> θ_D), 比热接近于常量 24.943J/(mol·K). 实际生产和工程中应用的是定压比热, 对固体来说定压比热和定容比热的差别一般可以忽略.

根据热容激光器工作原理, Nd:GGG 晶体在低温区较大的比热以及比热随温度的升高而增加有助于激光器的储能. 在测试范围内, 比热随温度的升高而增加, 符合德拜模型的理论描述.

令 a = θ_D/T, x = (t+1)a/2, 采用高斯数值积分计算 (2) 式, 有:

$$C_v = \frac{9nR}{2a^2} \sum_i A_i f\left(\frac{t_i+1}{2}a\right) \quad (3)$$

其中 t_i、A_i 为高斯-勒让德数值积分的节点及相应系数, 它们可由数学手册查得. 由热容的实验值,

用 (3) 式进行最小二乘拟合得到德拜温度为 711K.

激光脉冲法是通过激光脉冲瞬时加热试样的正面, 同时测量试样背面的温度变化, 试样的热扩散系数可由 Parker 表达式给出:

$$\alpha = \frac{1.38L^2}{\pi^2 t_{1/2}} \quad (4)$$

其中 L 为试样厚度, t_{1/2} 为试样背面温度达到最大值的 1/2 所需时间, 可在试样背面温升曲线上求出.

热扩散系数表征物质在非稳态条件下热量传播速度的特性, 它决定了物质达到热平衡的速度, 晶体中主要由声子导热决定, 可表示为 [4]:

$$\alpha = \frac{1}{3} l \cdot \nu \quad (5)$$

其中 l 和 ν 分别是声子的平均自由程和声速. 在低温 (T << θ_D) 时, 有 l ∝ e^{θ_D/bT}, 在高温 (T >> θ_D) 时, l ∝ 1/T.

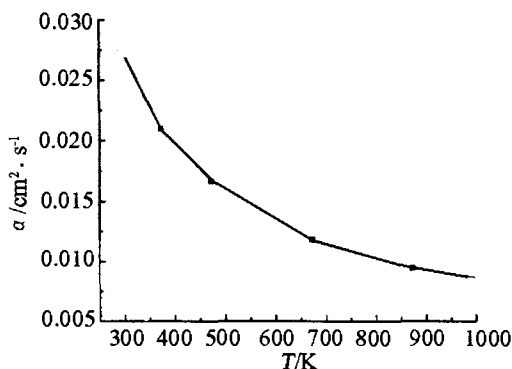


图 1 Nd:GGG 晶体热扩散系数

Fig. 1 Thermal diffusivity of Nd:GGG crystal

从图 1 所示的 Nd:GGG 晶体的热扩散系数 α 随温度的变化图中可以看到, 随着温度的升高热扩散系数减小, 与理论相符. 在相同温度下, Nd:GGG 的热扩散系数大于 Yb:YAG 的热扩散系数 [5]. 在低温区, Nd:GGG 晶体具有较大的热扩散系数, 能够满足热容激光器对工作介质的温度能迅速变化的要求. 较大的热扩散系数意味着在相同的加热和冷却条件下, 晶体材料各处的温差较小, 因此, 光学畸变也就很小.

导热系数是指稳定状态下热量流过材料的速率, 表征物质在稳态条件下的导热能力. 利用测得的比热和热扩散系数, 结合晶体密度, 根据方程 λ = α × C_p × ρ, 可以计算 Nd:GGG 晶体的导热系数, 如图 2 中虚线所示. 其中, λ 为导热系数, C_p 为晶体的比热, ρ 为晶体的密度. 从图中可见, Nd:GGG 晶体的导热系数随温度的升高而减小, 这

与晶体的热扩散系数与温度的关系类似, 相同温度下 Nd:GGG 的导热系数大于 Yb:YAG 晶体的导热系数^[5]. 室温下的导热系数测量值与文献^[6]报道的 $9\text{Wm}^{-1}\text{k}^{-1}$ 基本一致, 其中室温下的 C_p 是由公式 (1) 拟合得到的.

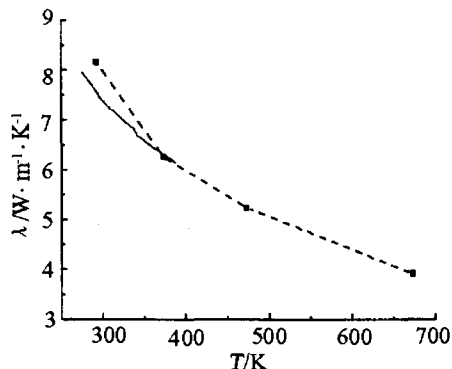


图 2 Nd:GGG 晶体导热系数

Fig. 2 Thermal conductivity of Nd:GGG crystal

图 2 中的实线是用 Quantum Design 公司的 PPMS 系统测得的 Nd:GGG 晶体的导热系数. 该系统只能测试较低的温度区间, 与计算得到的导热系数相一致, 随着温度的升高, 导热系数减小.

4 结论

实验测量了 Nd:GGG 激光晶体的比热和热扩散

系数, 计算了晶体的导热系数, 与用仪器直接测得的导热系数相一致. 测量结果表明: Nd:GGG 激光晶体的比热随着温度的升高而缓慢增加, 晶体的热扩散系数和导热系数随着温度的升高而显著减小; 温度较低时, Nd:GGG 激光晶体具有较大的比热、热扩散系数和导热系数, 适合作高平均功率热容激光器的工作介质; 计算得到 Nd:GGG 晶体的德拜温度为 711K.

参考文献

- [1] 张庆礼, 殷绍唐, 王爱华, 等. 量子电子学学报, 2002, 19 (6): 481-484.
- [2] 谢华清 (XIE Hua-Qing, et al). 无机材料学报 (Journal of Inorganic Materials), 2002, 17 (2): 225-229.
- [3] 奚同庚, 周新宇, 李宗杰, 等. 工程热物理学报, 1980, 1 (6): 147-154.
- [4] Aggarwal T L, Fan T Y. *Applied Optics*, 2005, 44 (13): 2673-2677.
- [5] 邱宏伟, 钟鹤裕, 李红军, 等. 中国激光, 2002, A29 (2): 173-175.
- [6] 李成, 曹余惠. 激光与红外, 1995, 25 (6): 16-20.